

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: HWANG, Gan-Lin et al. Conf.:  
Appl. No.: NEW Group:  
Filed: November 20, 2003 Examiner:  
For: CARBON NANOCAPSULE SUPPORTED CATALYSTS

L E T T E R

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

November 20, 2003

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

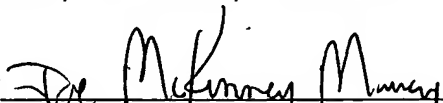
<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
TAIWAN	092119776	July 21, 2003

A certified copy of the above-noted application is attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 02-2448 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By   
Joe McKinney Muncy, #32,334

KM/msh  
0941-0870P

P.O. Box 747  
Falls Church, VA 22040-0747  
(703) 205-8000

Attachment(s)

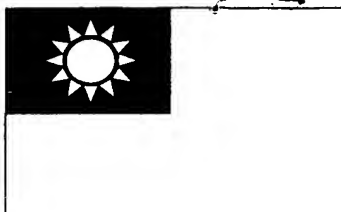
Gan-Lin Hwang

1071

11/20/03-B51K3

703-205-8000

0941-0870P



中華民國經濟部智慧財產局

INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE  
MINISTRY OF ECONOMIC AFFAIRS  
REPUBLIC OF CHINA

茲證明所附文件，係本局存檔中原申請案的副本，正確無訛，

其申請資料如下：

This is to certify that annexed is a true copy from the records of this office of the application as originally filed which is identified hereunder:

申請日：西元 2003 年 07 月 21 日

Application Date

申請案號：092119776

Application No.

申請人：財團法人工業技術研究院

Applicant(s)

局長

Director General

蔡練生

發文日期：西元 2003 年 9 月 10 日

Issue Date

發文字號：09220933600

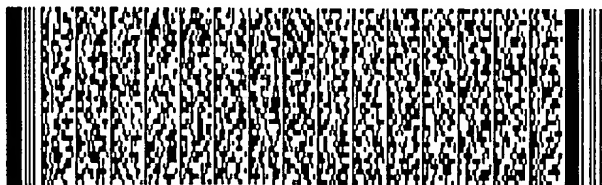
Serial No.

申請日期：	IPC分類
申請案號：	

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

一、 發明名稱	中文	作為觸媒載體之奈米碳球
	英文	Carbon nanocapsule as catalyst support
二、 發明人 (共2人)	姓名 (中文)	1. 黃贛麟 2. 張兆綱
	姓名 (英文)	1. HWANG GAN-LIN 2. CHANG CHAO-KANG
	國籍 (中英文)	1. 中華民國 TW 2. 中華民國 TW
	住居所 (中文)	1. 台南市南區彰南里2鄰中華西路一段56巷1號2樓 2. 台北市信義區忠孝東路五段236巷3弄27號3樓
	住居所 (英文)	1. 2.
三、 申請人 (共1人)	名稱或姓名 (中文)	1. 財團法人工業技術研究院
	名稱或姓名 (英文)	1. INDUSTRIAL TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE
	國籍 (中英文)	1. 中華民國 TW
	住居所 (營業所) (中文)	1. 新竹縣竹東鎮中興路四段一九五號 (本地址與前向貴局申請者相同)
	住居所 (營業所) (英文)	1.
	代表人 (中文)	1. 翁政義
	代表人 (英文)	1. Weng, Cheng-I



0424\_9960TWE(NI)-02920007;renee.pld

四、中文發明摘要 (發明名稱：作為觸媒載體之奈米碳球)

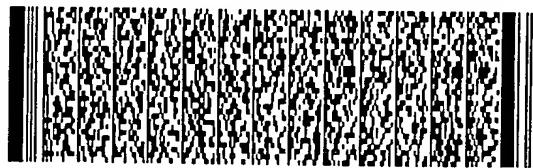
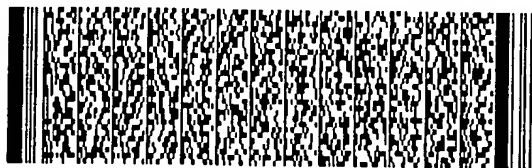
本發明係有關於一種作為觸媒載體之奈米碳球，包含有金屬觸媒微粒鍵結於此奈米碳球之表面，其結構可以化學通式 $F(-M)_n$ 表示，其中F為奈米碳球，M為金屬觸媒微粒，n代表金屬觸媒微粒數目。本發明將奈米碳球應用為金屬觸媒微粒之載體，可使此金屬觸媒具有特殊的催化性質，並藉由奈米碳球的良好分散性，提高金屬觸媒的分散均勻性，進而提升其催化效果。

伍、(一)、本案代表圖為：第\_\_\_3\_\_\_圖

(二)、本案代表圖之元件代表符號簡單說明：  
無。

六、英文發明摘要 (發明名稱：Carbon nanocapsule as catalyst support)

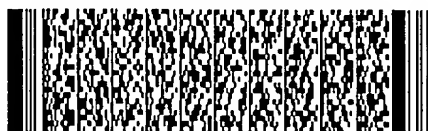
A carbon nanocapsule as catalyst support. The carbon nanocapsule, including at least one metallic catalyst particle on its surface, is expressed as  $F(-M)_n$ , wherein F is the carbon nanocapsule, M is the metallic catalyst particle, and n is the number of the metallic catalyst particle. By applying the carbon nanocapsule as a catalyst support, the catalytic behavior of the



四、中文發明摘要 (發明名稱：作為觸媒載體之奈米碳球)

六、英文發明摘要 (發明名稱：Carbon nanocapsule as catalyst support)

metallic catalyst particle is specialized, the dispersion is improved, and the catalytic effect is enhanced.



一、本案已向

國家(地區)申請專利

申請日期

案號

主張專利法第二十四條第一項優先權

無

二、☐主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

申請案號：

無

日期：

三、主張本案係符合專利法第二十條第一項☐第一款但書或☐第二款但書規定之期間

日期：

四、☐有關微生物已寄存於國外：

寄存國家：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐有關微生物已寄存於國內(本局所指定之寄存機構)：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐熟習該項技術者易於獲得, 不須寄存。



## 五、發明說明 (1)

### 發明所屬之技術領域

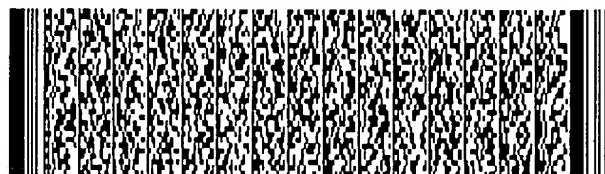
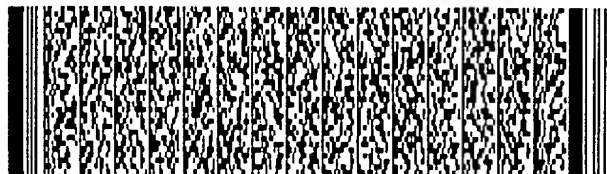
本發明係有關於奈米碳球(carbon nanocapsules)，且特別有關於一種作為觸媒載體之奈米碳球。

### 先前技術

奈米碳球與奈米碳管於1991年一起被發現，然而十餘年來有關奈米碳球的研究並不多。回顧奈米碳球的研發過程中，最初僅是在製造奈米碳管的同時發現少量奈米碳球，而數量只足夠在電子顯微鏡下觀察結構，且由於傳統方法所得產物以長奈米碳管為主，奈米碳球與碳管間有強的凡得瓦力，在量少的情況下不易將其分離純化，以致在高純度奈米碳球的製備方面，一直沒有突破性的進展，使奈米碳球的相關應用陷於停頓狀態。

但近年來經由不斷的嘗試及努力，終於在高純度中空奈米碳球或是高純度磁性金屬填充奈米碳球的製備都有進一步的成果（參考本案發明人相關專利申請案91103635及91117435）。

奈米碳球(carbon nanocapsule)的結構，是由多層石墨層以球中球的形式所組成的多面體碳簇，其直徑約3~100 nm，外層具有與多層奈米碳管(carbon nanotube)相同的石墨層結構。奈米碳球又可分為中空碳球與填充金屬碳球：中空碳球其內部為中空，而填充金屬碳球內部則填充有金屬、金屬氧化物、金屬碳化物(metal carbide)或合金材料。



## 五、發明說明 (2)

如上述，由於奈米碳球特殊的結構，使其具有不同，碳六十與奈米碳管的光、電、磁性質，且多面體狀的奈米碳球為高度石墨化結構的材料，具有堅硬、高導電導熱性與高表面積的特性，適合作為金屬觸媒微粒的支撐載體。

一般常用來作為金屬觸媒微粒支撐載體的材料包括：氧化鋁、Zeolite、氧化矽、氧化鎂或是活性炭、奈米碳管等碳材料。金屬觸媒微粒如附著於不同的支撐載體上，因環境影響會產生不同的催化效果。因此，觸媒載體的選擇取決於特殊的催化目的、金屬觸媒微粒與載體是否相容、載體應用環境等條件。

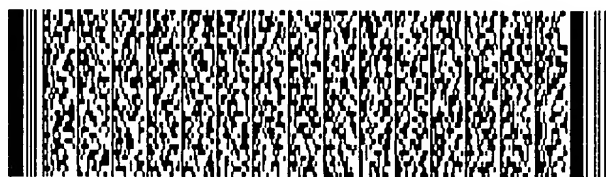
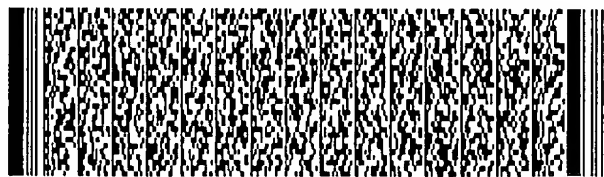
文獻上已習知碳材料可作為金屬觸媒微粒的支撐載體，例如：活性炭、奈米碳管等，並對這些觸媒載體的催化效果已有許多報導。然而，目前並沒有以類似奈米碳球這樣的多面體碳簇材料為觸媒載體的研究報導。

有鑑於此，為開發奈米碳球在觸媒領域的應用潛能，本發明的目的在於結合前述高純度奈米碳球的製備技術，以提出一種奈米碳球承載金屬觸媒微粒結構體。

### 發明內容

為達上述目的，本發明提供一種作為觸媒載體之奈米碳球，包含有金屬觸媒微粒鍵結於此奈米碳球之表面，其結構可以化學通式 $F(-M)_n$ 表示，其中F為奈米碳球，M為金屬觸媒微粒，n代表金屬觸媒微粒數目。

本發明中所使用之奈米碳球為一種由多層石墨層以球





### 五、發明說明 (3)

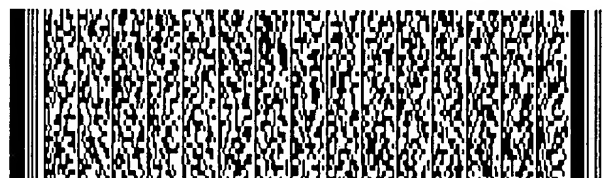
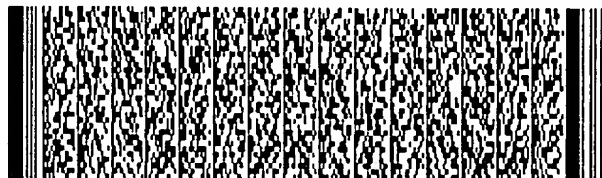
中球的結構所組的多面體碳簇，其直徑為介於3 ~ 100 nm，外層具有與多層奈米碳管相同的石墨層結構，其可為中空奈米碳球，或內部填充有金屬、金屬氧化物、金屬碳化物或合金材料的金屬填充奈米碳球。上述填充於奈米碳球內部之金屬較佳為磁性金屬、磁性金屬氧化物、磁性金屬碳化物或磁性合金材料。磁性金屬如為Sc、V、Cr、Fe、Co、Ni、Y、Zr、Mo、Ru、Rh、Pd、La、Ce、Pr、Nd、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Lu、Ta、Os、Ir、Pt、Au、Th、U或其組合，其中又以Co、Fe、Ni、La、Y等元素或其組合較佳。

本發明中所使用之金屬觸媒微粒可為以金屬原子為主體所組成之奈米團簇，其具有催化化學反應之功能。金屬觸媒微粒的成分例如為純金屬、金屬氧化物、金屬碳化物、金屬氮化物，或是合金材料。具體而言，例如為鉑、鈀、銩、銅、鐵、鈷、鎳、金或銀等。

本發明中所使用之金屬觸媒微粒亦可為有機金屬微粒，例如為 $\text{PtCl}_2(\text{NH}_2)_2$ 或二茂鐵(ferrocene)等。

由於奈米碳球在進行氧化還原反應時，主要在其外層石墨層的轉角處開始氧化，造成碳鍵的斷鍵而形成結構上的破壞，而金屬觸媒微粒便容易在此處與此奈米碳球重新形成鍵結。因此在本發明提供之作為觸媒載體之奈米碳球中，金屬觸媒微粒主要鍵結於奈米碳球外層石墨層之轉角處，與鄰近之碳原子形成一五元環結構。

本發明所提供作為觸媒載體之奈米碳球中，金屬觸媒



#### 五、發明說明 (4)

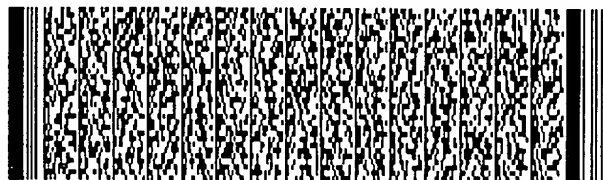
微粒的粒徑較佳為1~20 nm之間，而金屬觸媒微粒數目n的範圍則較佳介於1~20之間。

有別於其它種類的碳材料觸媒載體（例如：活性炭、奈米碳管…等），由於多面體狀的奈米碳球為高度石墨化結構的材料，其可提供特殊的石墨層轉角五元環碳結構，此石墨層轉角位置的碳活性較強，具有推電子的效果，以此奈米碳球為觸媒微粒載體，可使觸媒具有特殊的催化性質。此外，以填充磁性金屬奈米碳球作為載體，可以在最接近金屬觸媒微粒的地方提供一穩定的磁場來協助觸媒催化反應進行。因此，由於奈米碳球本身堅硬、高導電導熱性與高表面積的特性，使其適合作為金屬觸媒微粒的支撐載體，可穩定金屬觸媒微粒，且此等特殊性質是其它材料所沒有的。

由於本發明所開發出之奈米觸媒結構體具有不同於其它擔體材料的性質，因此應用範圍廣泛，例如可應用於燃料電池、石化工業、有機合成spin exchange反應、生物催化觸媒、發光材料等。

#### 發明詳細說明

本發明中，首先依據本案發明人先前所提出之奈米碳球之製備技術來製備高純度奈米碳球。接著對此高純度奈米碳球進行官能化。官能化奈米碳球的方式如以氧化還原法、環加成反應、或自由基加成反應等方法將部分奈米碳球表面之碳原子以官能基加以取代，使此奈米碳球形成可



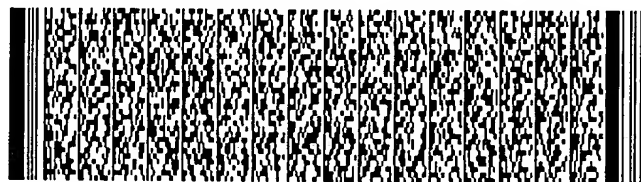
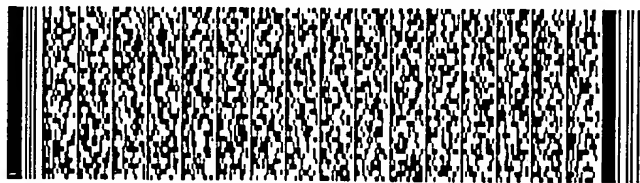
## 五、發明說明 (5)

均勻分散於溶劑中之官能化奈米碳球，例如在奈米碳球表面形成醇基( $-OH$ )、酮基( $-C=O$ )、醛基( $-CHO$ )、羧酸基( $-COOH$ )、 $-NHA_r$ 基、 $-N^+(CH_3)_2Ar$ 基、氨基、 $=CCl_2$ 基、 $-OSO_3-$ 基、 $-OH$ 基、 $-C(CH_3)_2COOCH_3$ 基、 $-C(CH_3)_2CN$ 基等等。

之後，進行化學置換反應，將上述與奈米碳球鍵結之官能基置換為觸媒微粒，便形成一種作為觸媒載體之奈米碳球。其方法例如為先將上述官能化奈米碳球溶於溶劑中，使其均勻分散，接著再加入包含有觸媒成分之化合物。溶劑較佳例如為乙二醇(ethylene glycol)、乙醇、水或四氫喃(tetrahydrofuran, THF)，反應時間如為4~6小時，反應溫度較佳為溶劑的迴流溫度，亦即溶劑的沸點。此化合物在溶劑中容易溶解為觸媒基團與不含觸媒之基團，且由於此不含觸媒之基團對鍵結於奈米碳球上之官能基具有更大鍵結力，因此上述官能基傾向於脫離奈米碳球表面，而與該不含觸媒之基團形成更為穩定之化合物。在此同時，觸媒基團便取代官能基，而與奈米碳球表面形成配位鍵結，此奈米碳球便成為觸媒載體。

由於奈米碳球本身為具有完整石墨結構與高表面積的碳簇材料，應用為金屬觸媒微粒的支撐載體時，可提供穩定金屬觸媒微粒的作用。本發明提供之作為觸媒載體之奈米碳球，其具有以下三點特色：

第一點，就結構上而言，奈米碳球為多面體碳簇材料，其上每一個碳原子皆為 $sp^2$ 構造。碳原子在石墨層中央部份的連接方式都是六元環，但在邊角或轉折部份則為五

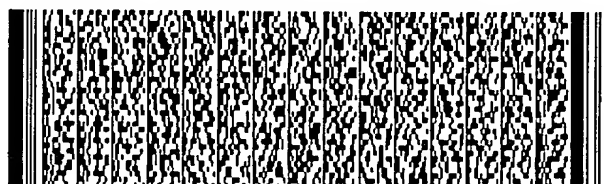
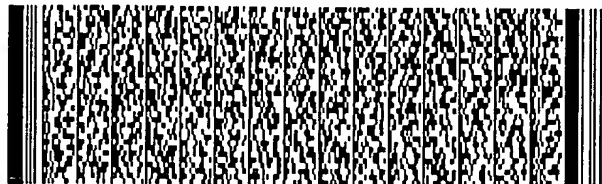


## 五、發明說明 (6)

元環。此點有別於其它活性炭、奈米碳管等之碳材料，這些碳材料主要提供了六元環的平面石墨結構來承載金屬觸媒微粒，而多面體構造的奈米碳球則於其石墨層轉角處提供了大量的五元環碳結構。因此，利用適當的氧化劑可以選擇性在奈米碳球石墨層轉角處產生官能基，進一步將金屬觸媒微粒沈積於此處。此外，由於此石墨層轉角位置的碳活性較強，具有推電子的效果，以此為觸媒微粒載體，可使金屬觸媒具有特殊的催化性質。

第二點，以填充金屬奈米碳球作為觸媒載體時，由於奈米碳球內部填充有具磁性的金屬，因此可提供磁場幫助特定觸媒催化反應進行。相較而言，傳統的觸媒支撐載體並不具磁性，因此有許多需藉由磁性催化的化學反應；例如：spin exchange，便需藉其它外加磁場方式或直接以磁性金屬微粒作為觸媒的方式來進行。本發明以內部填充磁性金屬奈米碳球來作為觸媒支撐載體，可以在最接近金屬觸媒微粒的地方提供一穩定的磁場來協助觸媒催化反應進行。若以填充了鈷60或鐳系等具放射性金屬的奈米碳球作為觸媒支撐載體，亦可能具有特殊催化效果。此外，以填充金屬奈米碳球作為觸媒載體時，可在化學反應完成後利用磁性輕易將觸媒與產物分離，而可進行回收與再使用，除了可減輕工業量產時之成本，還可解決一般有機金屬觸媒不易分離的問題。

第三點，奈米碳球為易分散的碳材料，以此為觸媒載體，可使金屬觸媒微粒易於分散均勻於奈米碳球載體上。



## 五、發明說明 (7)

均勻分散於載體的金屬觸媒微粒可以發揮更佳的催化效果。

綜上所述，以奈米碳球作為金屬觸媒微粒載體時，具有不同於其它擔體材料的性質，可使金屬觸媒具有特殊的催化性質，並藉由奈米碳球的良好分散性，提高金屬觸媒的分散均勻性，進而提升其催化效果。由本發明提供作為觸媒載體之奈米碳球，其可能的應用方向包括：燃料電池、石化工業、有機合成spin exchange反應、生物催化觸媒、發光材料等。

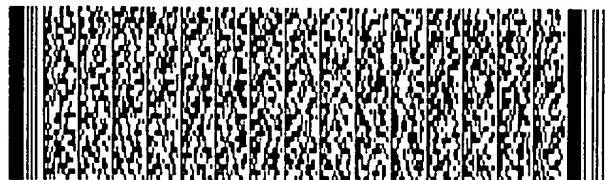
為讓本發明之上述和其他目的、特徵、和優點能更明顯易懂，下文特舉出較佳實施例，並配合所附圖式，作詳細說明如下：

### 實施方式

以下實施例中分別以中空奈米碳球以及填充金屬鈹(Tb)奈米碳球作為鉑(Pt)金屬微粒之觸媒載體。

實施例：

1. 如第1圖所示，首先對中空奈米碳球進行官能化。取1升燒瓶加入中空奈米碳球10克及500ml 體積比1:1的濃硫酸與硝酸混合溶液，經超音波震盪攪拌10 min後，開始加熱至約140℃迴餾2小時。迴餾完後冷卻、將試樣以離心方式使之與強酸分離，再以去離子水清洗中空奈米碳球3次以上，直到清洗液接近中性為止。最後乾燥產物，此產物為含羧酸官能基奈米碳球。此時試樣為黑色表面含有



#### 五、發明說明 (8)

-COOH 官能基之奈米碳球，以 0.1MNaOH 逆滴定鑑定得知每克奈米碳球上含有  $13 \mu\text{mol}$  的 -COOH 官能基。

2. 以穿透式電子顯微鏡(TEM)鑑定步驟1所得之產物(第2圖)，顯示步驟1之氧化法可選擇性優先氧化奈米碳球外殼轉角處的石墨層，產生破損並將-COOH 官能基製造於此轉角處。

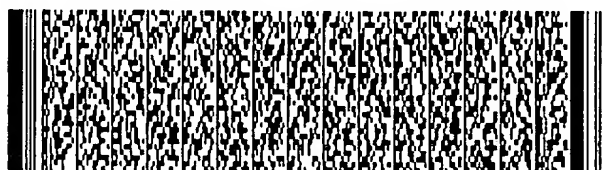
3. 取 200 mg 步驟1所得之羧酸基化奈米碳球，加入 200 ml 乙二醇(ethylene glycol)溶液中，分散溶解後，再加入 10 mg 氯化鉑(Platinum chloride,  $\text{PtCl}_4$ )，攪拌混合均勻後於  $140^\circ\text{C}$  下迴餾 6 小時後，冷卻，離心收集。

4. 鑑定步驟3產物，可看出粒徑 3nm 的 Pt 金屬觸媒均勻分佈於奈米碳球表面(第3圖)。

5. 取填充磁性金屬(Tb)奈米碳球作為觸媒載體，重複步驟1~4，並以穿透式電子顯微鏡對填充磁性金屬奈米碳球進行鑑定後，得到第4圖；再以穿透式電子顯微鏡對作為觸媒載體之填充磁性金屬奈米碳球進行鑑定後，得到第5圖。

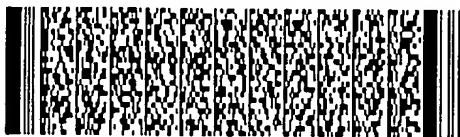
由第2圖與第4圖所示官能基化的中空奈米碳球與填充金屬奈米碳球的TEM照片。由照片可知，奈米碳球會因氧化現象而在其外層石墨層的轉角處產生破損。由第3圖與第5圖所示作為觸媒載體之中空奈米碳球與填充金屬奈米碳球之TEM圖，可見Pt金屬觸媒均勻分佈於奈米碳球表面。

雖然本發明已以較佳實施例揭露如上，然其並非用以



五、發明說明 (9)

限定本發明，任何熟習此技藝者，在不脫離本發明之精神和範圍內，當可作些許之更動與潤飾，因此本發明之保護範圍當視後附之申請專利範圍所界定者為準。



#### 圖式簡單說明

第1圖顯示實施例中奈米碳球的官能化。

第2圖顯示實施例中羧酸官能基化中空奈米碳球之TEM圖。

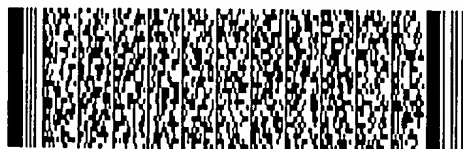
第3圖顯示實施例中作為觸媒載體之中空奈米碳球之TEM圖。

第4圖顯示實施例中羧酸官能基化填充磁性金屬奈米碳球之TEM圖。

第5圖顯示實施例中作為觸媒載體之填充磁性金屬奈米碳球之TEM圖。

#### 符號說明

無。





## 六、申請專利範圍

1. 一種作為觸媒載體之奈米碳球，包含有金屬觸媒微粒鍵結於該奈米碳球之表面，其以化學通式 $F(-M)_n$ 表示，其中F為該奈米碳球，M為該金屬觸媒微粒，n代表金屬觸媒微粒數目。

2. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該奈米碳球為一種由多層石墨層以球中球的結構所組的多面體碳簇，其直徑為介於3 ~ 100 nm。

3. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該奈米碳球為中空奈米碳球。

4. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該奈米碳球為內部填充有金屬、金屬氧化物、金屬碳化物或合金材料的金屬填充奈米碳球。

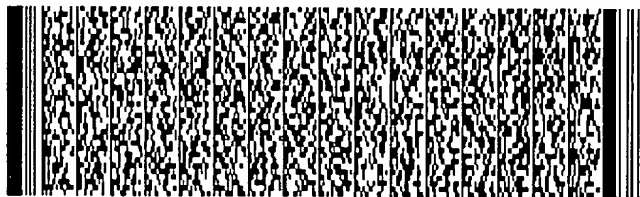
5. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中n的範圍介於1 ~ 20之間。

6. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為以金屬原子為主體所組成之奈米團簇，其具有催化化學反應之功能。

7. 如申請專利範圍第6項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為純金屬、金屬氧化物、金屬碳化物、金屬氮化物，或是合金材料。

8. 如申請專利範圍第7項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為鉑、鈀、銻、銅、鐵、鈷、鎳、金或銀。

9. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米



## 六、申請專利範圍

碳球，其中該金屬觸媒微粒為有機金屬微粒。

10. 如申請專利範圍第9項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為 $\text{PtCl}_2(\text{NH}_2)_2$ 或二茂鐵(ferrocene)。

11. 如申請專利範圍第2項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒M是鍵結於該奈米碳球F外層石墨層之轉角處。

12. 如申請專利範圍第11項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒M與鄰近之碳原子形成一五元環結構。

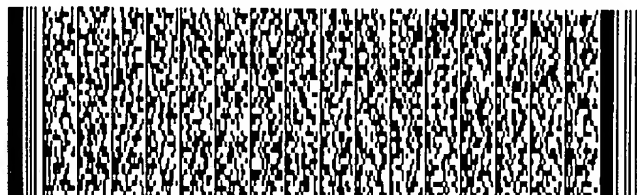
13. 如申請專利範圍第1項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒M的粒徑為1~20 nm之間。

14. 一種作為觸媒載體之奈米碳球，包含有金屬觸媒微粒鍵結於該奈米碳球之表面石墨層之轉角處，而與鄰近之碳原子形成一五元環結構，其以化學通式 $\text{F}(-\text{M})_n$ 表示，其中F為該奈米碳球，M為該金屬觸媒微粒，n代表金屬觸媒微粒數目，該金屬觸媒微粒M的粒徑介於1~20 nm之間，n的範圍介於1~20之間。

15. 如申請專利範圍第14項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該奈米碳球為一種由多層石墨層以球中球的結構所組的多面體碳簇，其直徑為介於3 ~ 100 nm。

16. 如申請專利範圍第14項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該奈米碳球為中空奈米碳球。

17. 如申請專利範圍第14項所述之作為觸媒載體之奈



#### 六、申請專利範圍

米碳球，其中該奈米碳球為內部填充有金屬、金屬氧化物、金屬碳化物或合金材料的金屬填充奈米碳球。

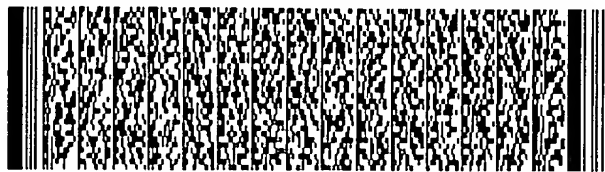
18. 如申請專利範圍第14項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為以金屬原子為主體所組成之奈米團簇，其具有催化化學反應之功能。

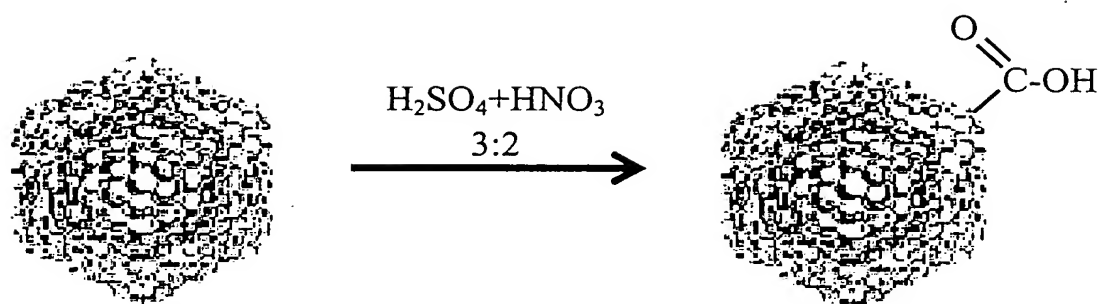
19. 如申請專利範圍第18項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為純金屬、金屬氧化物、金屬碳化物、金屬氮化物，或是合金材料。

20. 如申請專利範圍第19項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為鉑、鈀、銻、銅、鐵、鈷、鎳、金或銀。

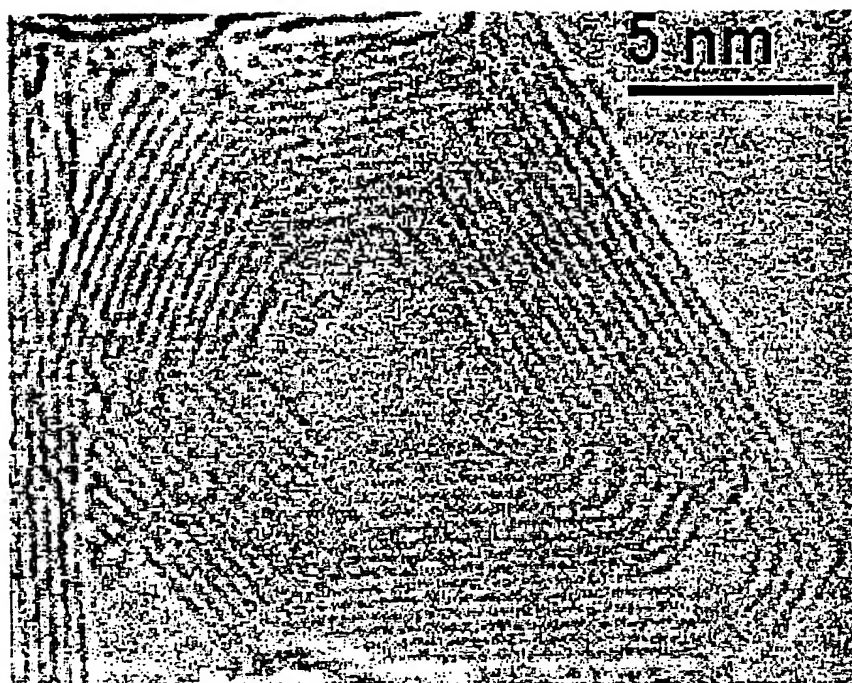
21. 如申請專利範圍第14項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為有機金屬微粒。

22. 如申請專利範圍第21項所述之作為觸媒載體之奈米碳球，其中該金屬觸媒微粒為 $\text{PtCl}_2(\text{NH}_2)_2$ 或二茂鐵(ferrocene)。

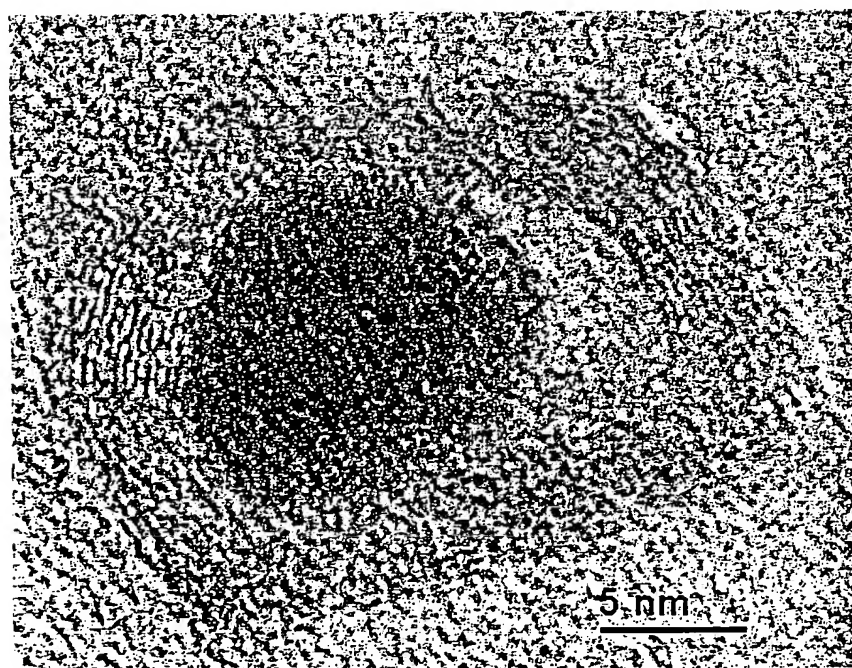




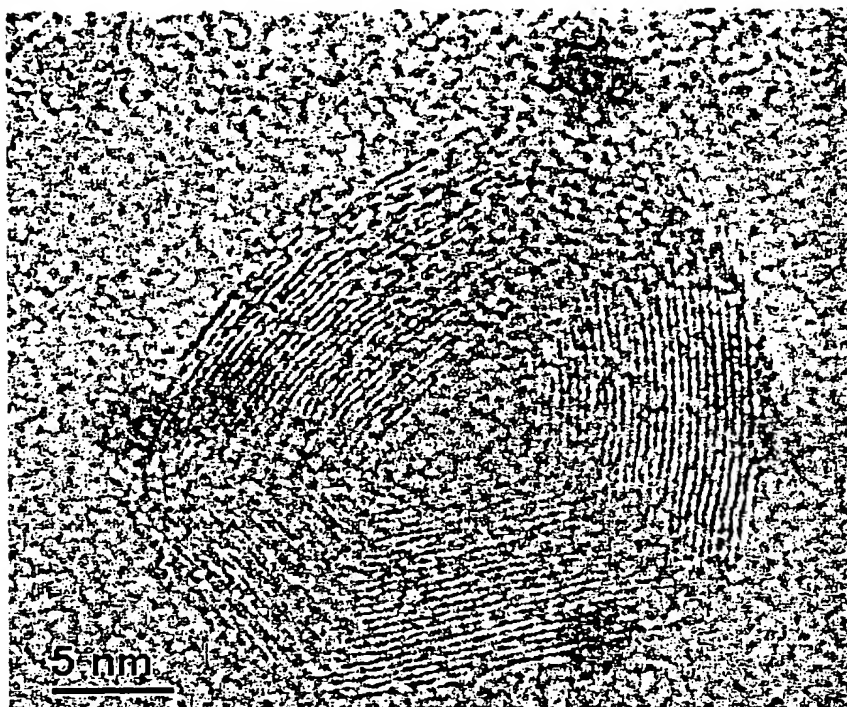
第 1 圖



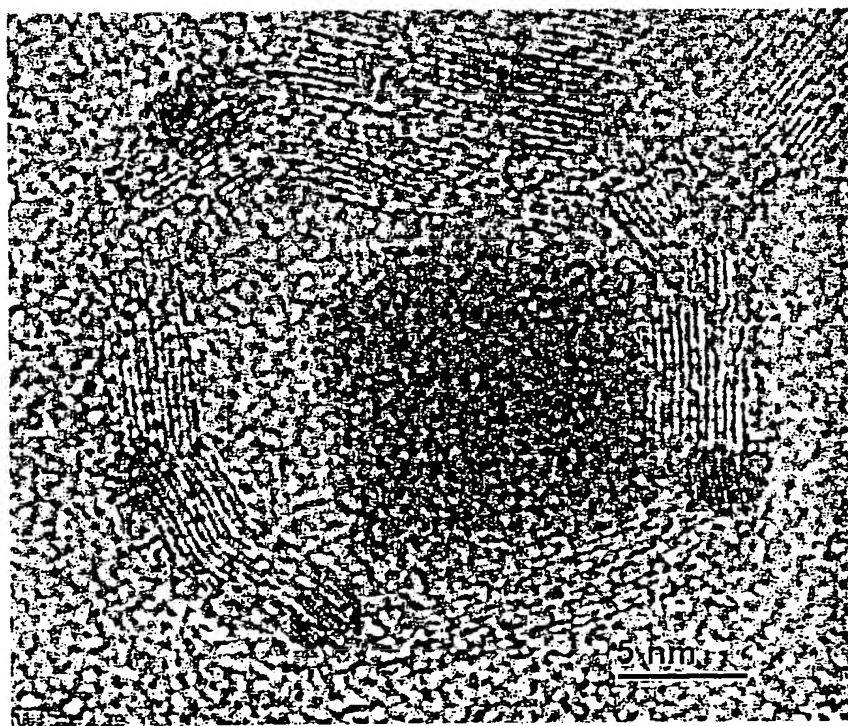
第 2 圖



第 3 圖

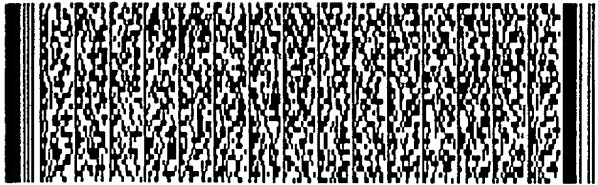


第 4 圖

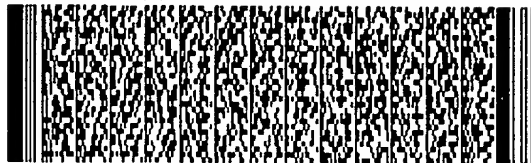


第 5 圖

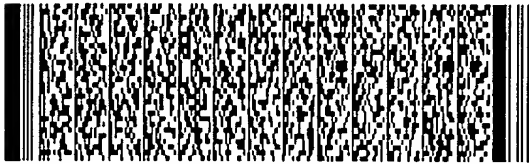
第 1/17 頁



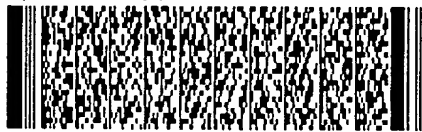
第 2/17 頁



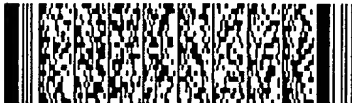
第 2/17 頁



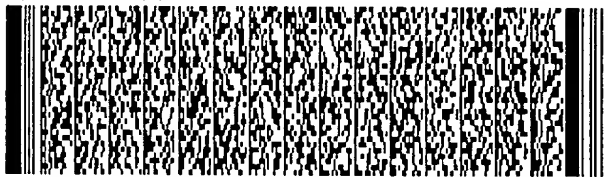
第 3/17 頁



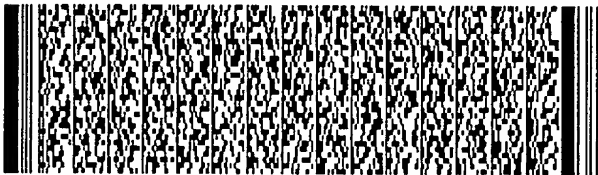
第 4/17 頁



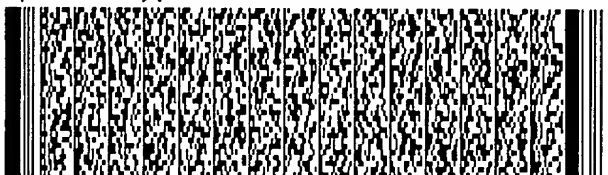
第 5/17 頁



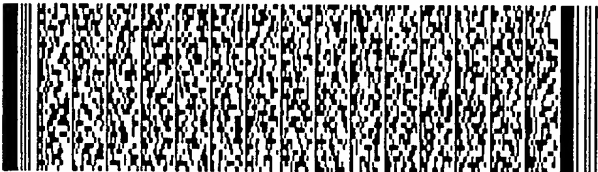
第 5/17 頁



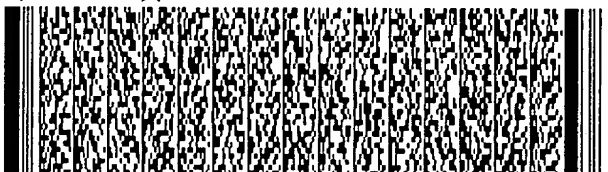
第 6/17 頁



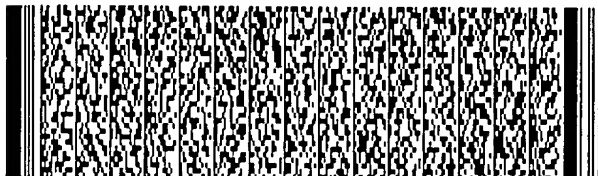
第 6/17 頁



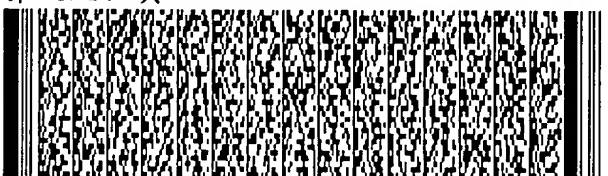
第 7/17 頁



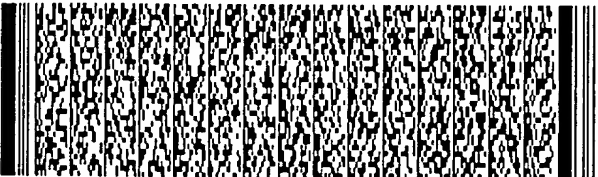
第 7/17 頁



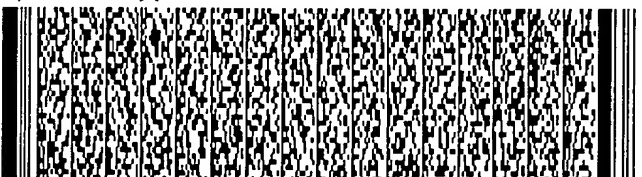
第 8/17 頁



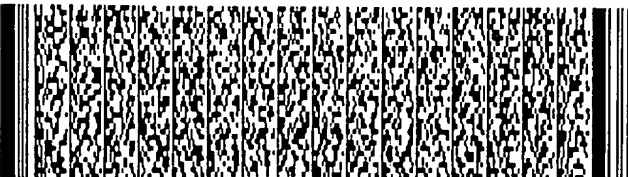
第 8/17 頁



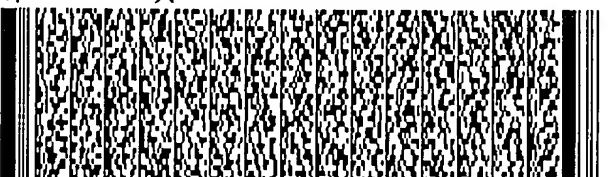
第 9/17 頁



第 9/17 頁

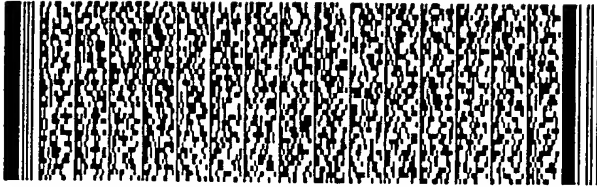


第 10/17 頁

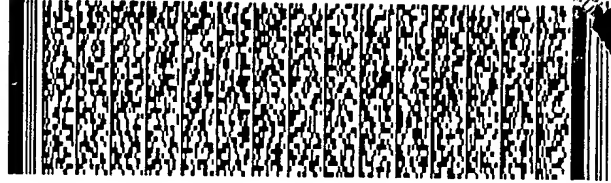




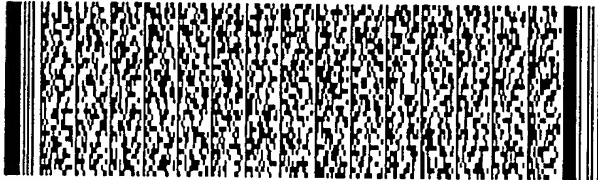
第 10/17 頁



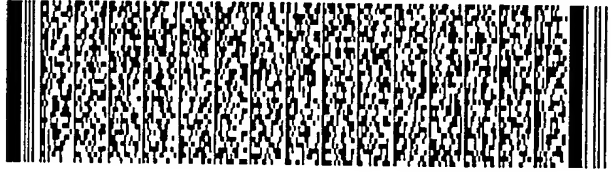
第 11/17 頁



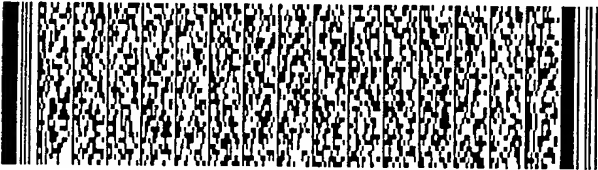
第 11/17 頁



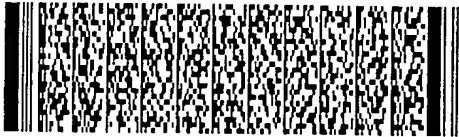
第 12/17 頁



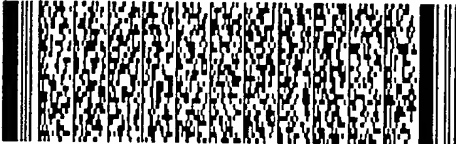
第 12/17 頁



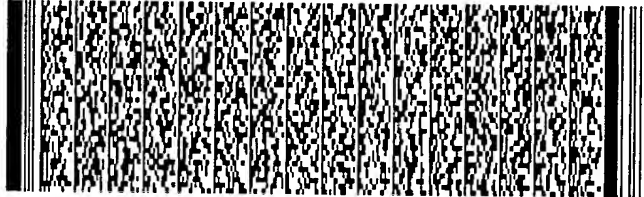
第 13/17 頁



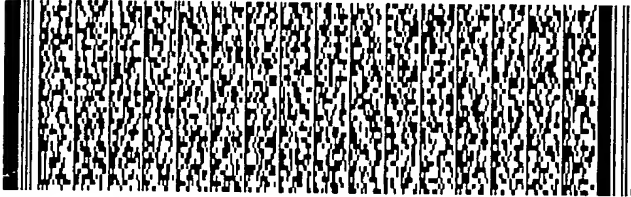
第 14/17 頁



第 15/17 頁



第 16/17 頁



第 17/17 頁

